

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 2003年 1月16日
Date of Application:

出願番号 特願2003-008138
Application Number:

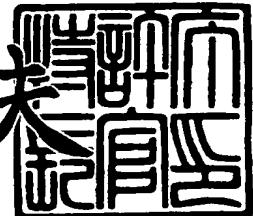
[ST. 10/C] : [JP2003-008138]

出願人 東ソー株式会社
Applicant(s):

2003年 9月25日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今井康夫



【書類名】 特許願

【整理番号】 PA211-0951

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 C08F222/40

【発明者】

【住所又は居所】 三重県四日市市別名 6-7-5

【氏名】 豊増 信之

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県海部郡蟹江町西ノ森一丁目 102 番地

【氏名】 猪飼 陽二郎

【特許出願人】

【識別番号】 000003300

【氏名又は名称】 東ソー株式会社

【代表者】 土屋 隆

【電話番号】 (03)5427-5134

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 003610

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 位相差フィルム

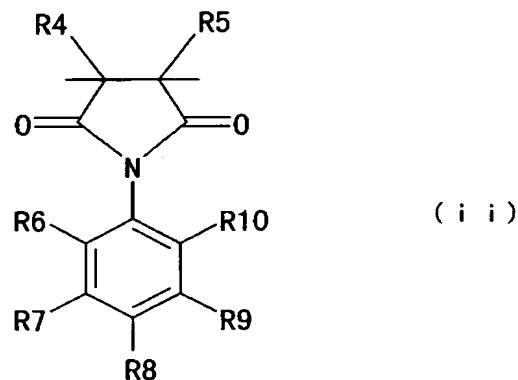
【特許請求の範囲】

【請求項 1】 透明耐熱樹脂が、下記の式（i）で表される α -オレフィン単位及び式（ii）で表されるN-フェニル置換マレイミド単位からなる共重合体であって、ポリスチレン換算の重量平均分子量が 5×10^3 以上 5×10^6 以下である透明光学材料をフィルム成形して、更にガラス転移温度（以下Tgと称する）を基準としTg±20℃の範囲で一軸延伸加工し負の複屈折性を示すフィルムであり、一軸延伸配向後の三次元屈折率が、延伸方向を面内x軸として、面内の直交方向をy軸、面外の垂直方向をz軸と置いた場合に、x軸方向屈折率をnx、y軸方向屈折率をny、z軸方向屈折率をnzとすると、 $n_z \geq n_y > n_x$ である位相差フィルム。

【化1】



【化2】



（ここで、式（i）において、R1、R2、R3はそれぞれ水素又は炭素数1～6のアルキル基である。式（ii）において、R4、R5はそれぞれ水素又は炭素数1～8の直鎖状あるいは分岐状アルキル基であり、R7、R8、R9はそれぞれ水素、ハロゲン系元素、カルボン酸、カルボン酸エステル、水酸基、シアノ

基、ニトロ基又は炭素数1～8の直鎖状或いは分岐状アルキル基である。R6、R10はそれぞれ水素、ハロゲン系元素、カルボン酸、カルボン酸エステル、ケトン、水酸基、シアノ基、ニトロ基又は炭素数1～8の直鎖状あるいは分岐状アルキル基であって、R6又はR10のいずれか一方が水素の場合は他方が必ず水素以外のハロゲン系元素、カルボン酸、カルボン酸エステル、ケトン、水酸基、シアノ基、ニトロ基又は炭素数1～8の直鎖状あるいは分岐状アルキル基である。)

【請求項2】請求項1に記載の一軸延伸配向する前のフィルムが溶液キャスト法にて作成されることを特徴とする位相差フィルム。

【請求項3】請求項1に記載の一軸延伸配向する前のフィルムが押出成形にて作成されることを特徴とする位相差フィルム。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、耐熱性、力学特性などに優れ、負の複屈折性であり、高屈折率、高アッペ数を示す透明耐熱樹脂からなる光学材料からなるフィルムを一軸延伸配向してなる位相差フィルムに関する。

【0002】

【従来の技術】

光学表示素子として液晶ディスプレイ（以下LCDと略記する）などが注目されており、光学特性制御の目的から高分子材料を中心とする光学異方性の制御によって光学表示素子の光学特性を補償する要求が高まりつつあり、これに関する研究が多い。こうした光学補償を行う目的で利用されるのが位相差フィルムに代表される光学補償フィルムである。

【0003】

従来、LCDなどの光学特性制御の目的では透明な高分子材料の光学異方性を制御することで検討されてきたが、用いられてきた材料の殆どは正の複屈折性を示すものであった。光学異方性として、正の複屈折性を示す材料とは、例えば高分子の場合、その分子鎖を延伸配向させるとその配向方向の屈折率が大きくなる

ものをさす。例えば、ポリエーテルサルホン樹脂（以下PESと称する）、ポリカーボネート樹脂（以下PCと称する）及び環状オレフィン系樹脂などが正の複屈折性を示す光学樹脂材料として知られている。

【0004】

一方、負の複屈折性を示す材料とは高分子の分子鎖を延伸配向させると配向方向と異なる方向（例えば直交する方向など）に屈折率が大きくなるものをさす。例えば、ポリメチルメタクリレート（以下PMMAと称する）やポリスチレン（以下PSと称する）などが挙げられる。

【0005】

しかしながら、ここに挙げられるような負の複屈折性材料は、係る光学表示素子の光学補償の目的には耐熱性が不十分である。係る要求の耐熱性のレベルとは一般にPCのTg程度、即ち、約140℃のTgが必要とされる。そのため、負の複屈折性を示し、耐熱性を有する材料を係る目的に利用する例は殆どない。

【0006】

そこで、従来、敢えて正の複屈折性を示すPCなどを特殊な配向制御を施すことで負の複屈折性材料しか発現し得ない光学異方性を検討しているものがある（例えば、特許文献1、特許文献2、特許文献3、特許文献4参照）。

【0007】

正の複屈折性を示す耐熱性の透明樹脂としてPCフィルムなどは、適切な条件の下で一軸延伸配向させた際に、フィルム面内の三次元屈折率が、図1に示すように面内延伸方向をx軸として、面内の直交方向をy軸、面外の垂直方向をz軸と置いた場合、x軸方向屈折率をnx、y軸方向屈折率をny、z軸方向屈折率をnzとすると、図2に示すように $n_x > n_y \geq n_z$ となるようなものが中心に行われていた。

【0008】

一方、特許文献1～4の技術はいずれも熱収縮性フィルムをPCフィルムの片面側あるいは両面側に貼り付けて延伸加工操作段階で面内方向の収縮を制御することによって面外のz軸方向の屈折率を高める方法が示されている。

【0009】

しかし、本来ならば負の複屈折性材料フィルムを延伸加工により配向加工させて、フィルム面外である z 軸方向の屈折率を高める制御を敢えて正の複屈折性材料の加工により行うことは非常に困難さを伴うのが現状である。

【0010】

【特許文献1】特開2000-206328号公報

【特許文献2】特開2000-304924号公報

【特許文献3】特開2000-304925号公報

【特許文献4】特開2000-329939号公報

【発明が解決しようとする課題】

本発明の目的は、上述の事実に鑑みなされたものであって、その目的とするところは、耐熱性に優れ、透明性を示す樹脂フィルムを一軸延伸配向させてなる負の複屈折を示す位相差フィルムを提供することにある。

【0011】

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、鋭意検討した結果、 α -オレフィンユニットと特定のN-フェニル置換マレイミドユニットから構成される共重合体からなるフィルムを一軸延伸配向させることで負の複屈折性を有する、特定の光学異方性を示す位相差フィルムを実現できることを見出し、本発明を完成するに至った。

【0012】

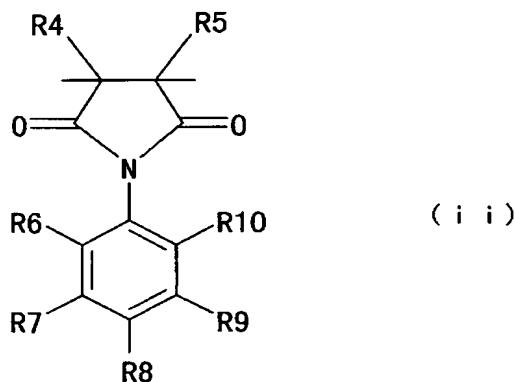
すなわち、本発明は、透明耐熱樹脂が、下記の式（i）で表される α -オレフィン単位及び式（ii）で表されるN-フェニル置換マレイミド単位からなる共重合体であって、ポリスチレン換算の重量平均分子量が 5×10^3 以上 5×10^6 以下である透明光学材料をフィルム成形して、更にガラス転移温度（以下 T_g と称する）を基準とし $T_g \pm 20^\circ\text{C}$ の範囲で一軸延伸加工し負の複屈折性を示すフィルムであり、一軸延伸配向後の三次元屈折率が、延伸方向を面内 x 軸として、面内の直交方向を y 軸、面外の垂直方向を z 軸と置いた場合に、 x 軸方向屈折率を n_x 、 y 軸方向屈折率を n_y 、 z 軸方向屈折率を n_z とすると、 $n_z \geq n_y > n_x$ である位相差フィルムに関するものである。

【0013】

【化3】



【化4】



(ここで式(i)において、R1、R2、R3はそれぞれ水素又は炭素数1～6のアルキル基である。式(ii)において、R4、R5はそれぞれ水素又は炭素数1～8の直鎖状あるいは分岐状アルキル基であり、R7、R8、R9はそれぞれ水素、ハロゲン系元素、カルボン酸、カルボン酸エステル、水酸基、シアノ基、ニトロ基又は炭素数1～8の直鎖状或いは分岐状アルキル基である。R6、R10はそれぞれ水素、ハロゲン系元素、カルボン酸、カルボン酸エステル、ケトン、水酸基、シアノ基、ニトロ基又は炭素数1～8の直鎖状あるいは分岐状アルキル基であって、R6又はR10のいずれか一方が水素の場合は他方が必ず水素以外のハロゲン系元素、カルボン酸、カルボン酸エステル、ケトン、水酸基、シアノ基、ニトロ基又は炭素数1～8の直鎖状あるいは分岐状アルキル基である。)

本発明に用いる透明耐熱樹脂は、式(i)で表される α -オレフィン単位及び式(ii)で表されるN-フェニル置換マレイミド単位からなる共重合体であり、ポリスチレン換算の重量平均分子量が 5×10^3 以上 5×10^6 以下である光学材料である。

【0014】

本発明の共重合体の構成単位である式（i）において、R1、R2、R3はそれぞれ水素又は炭素数1～6のアルキル基である。ここでR1、R2、R3が炭素数6を越えるアルキル置換基の場合にはガラス転移温度が著しく低下したり、このアルキル置換基が結晶化することで透明性を損なうなどの問題がある。

【0015】

式（i）における具体的な例示としては、イソブテン、2-メチル-1-ブテン、2-メチル-1-ペンテン、2-メチル-1-ヘキセン、2-メチル-1-ヘプテン、1-イソオクテン、2-メチル-1-オクテン、2-エチル-1-ペンテン、2-メチル-2-ペンテン、2-メチル-2-ヘキセン、エチレン、プロピレン、1-ブテン及び1-ヘキセンなどのオレフィン類が挙げられ、このうち1, 2-ジ置換オレフィン、特にイソブテンが好ましい。これらのオレフィン類は1種又は2種以上組み合わされたものでもよく、その比率は限定されない。

【0016】

本発明の共重合体の構成単位である式（ii）において、R4、R5はそれぞれ水素又は炭素数1～8の直鎖状あるいは分岐状アルキル基である。R7、R8、R9はそれぞれ水素、ハロゲン系元素、カルボン酸、カルボン酸エステル、水酸基、シアノ基、ニトロ基又は炭素数1～8の直鎖状或いは分岐状アルキル基である。R6、R10はそれぞれ水素、ハロゲン系元素、カルボン酸、カルボン酸エステル、ケトン、水酸基、シアノ基、ニトロ基又は炭素数1～8の直鎖状あるいは分岐状アルキル基であり、R6又はR10のいずれか一方が水素の場合は他方が必ず水素以外のハロゲン系元素、カルボン酸、カルボン酸エステル、ケトン、水酸基、シアノ基、ニトロ基又は炭素数1～8の直鎖状あるいは分岐状アルキル基である。式（ii）において、R4、R5、R6、R7、R8、R9、R10は、炭素数8を越えるアルキル置換基を導入するとガラス転移温度の著しい低下や、アルキル置換基の結晶化によって透明性が損なわれるなどの問題がある。アルキル置換基としては炭素数1～8の直鎖状あるいは分岐状アルキル基が好ましい。

【0017】

具体的な例示としては、マレイミド化合物のN置換基としてオルト位に特定の

置換基を有するフェニル化合物を導入したものを用いることができ、例えばN-(2-メチルフェニル)マレイミド、N-(2-エチルフェニル)マレイミド、N-(2-n-プロピルフェニル)マレイミド、N-(2-イソプロピル)マレイミド、N-(2-n-ブチルフェニル)マレイミド、N-(2-sec-ブチルフェニル)マレイミド、N-(2-tert-ブチルフェニル)マレイミド、N-(2-n-ペンチルフェニル)マレイミド、N-(2-tert-ペンチルフェニル)マレイミド、N-(2,6-ジメチルフェニル)マレイミド、N-(2,6-ジエチルフェニル)マレイミド、N-(2,6-ジ-n-プロピルフェニル)マレイミド、N-(2,6-ジイソプロピルフェニル)マレイミド、N-(2-メチル,6-エチルフェニル)マレイミド、N-(2-メチル,6-イソプロピルフェニル)マレイミド、N-(2-クロロフェニル)マレイミド、N-(2-ブロモフェニル)マレイミド、N-(2,6-ジクロロフェニル)マレイミド、N-(2,6-ジブロモフェニル)マレイミド、N-2-ビフェニルマレイミド、N-2-ジフェニルエーテルマレイミド、N-(2-シアノフェニル)マレイミド、N-(2-ニトロフェニル)マレイミドなどが挙げられ、これらは1種又は2種以上組み合わせたものでもよく、その比率は限定されない。

【0018】

式(i i)におけるフェニル基に導入する置換基は目的とする光学機能性の観点からオルト位即ちR6及び/又はR10に特定置換基を導入したものを利用する事が重要であるが、更にメタ位及び/又はパラ位即ちR7~R9にその他の置換基を導入してもよい。このようなフェニル基のオルト位以外の位置に置換基を導入した例としてはN-(2,4,6-トリメチルフェニル)マレイミド、N-(2,4-ジメチルフェニル)マレイミド、N-パープロモフェニルマレイミド、N-(2-メチル,4-ヒドロキシフェニル)マレイミド、N-(2,6-ジエチル,4-ヒドロキシフェニル)マレイミドなどが挙げられる。

【0019】

しかし、フェニル基のオルト位即ちR6及び/又はR10に置換基がない場合は、所期の目的を達成することができない。このような例としては、例えば、N-フェニルマレイミドなどを挙げることができる。

【0020】

更にオルト位であるR₆とR₁₀いずれにも置換基がなくメタ位及び又はパラ位としてR₇～R₉に置換基があるような場合も有効ではない。

【0021】

本発明の請求項に記載の式(i)と式(ii)からなる共重合体の合成方法としては公知の重合法が利用できる。公知の重合法としては、例えば、塊状重合法、溶液重合法、懸濁重合法及び乳化重合法などを挙げることができるがこれに限定されるものではない。

【0022】

またこの他の合成法として、ビニル系モノマーと無水マレイン酸とを共重合反応により式(i)の化合物を含む共重合体を作成して、無水マレイン酸部位に1級アミン化合物を反応させてイミド化反応を行わせることで式(ii)の化合物構造に対応するマレイミドのN置換基を導入して本発明の目的とする共重合体を得ることもできる。この場合の1級アミンとは、上記の機能発現に効果的なN-フェニル置換マレイミドに対応するような、アニリンの2～6位置に置換基を導入した物質などを用いることができる。

【0023】

本発明の透明耐熱樹脂光学材料における共重合体はその平均分子量が、ポリスチレン換算の重量平均分子量として 5×10^3 以上 5×10^6 以下である。重量平均分子量 5×10^6 を越える場合、及び 5×10^3 未満の場合には成形加工が困難となるので好ましくない。

【0024】

本発明者らは、鋭意検討した結果、 α -オレフィンユニットと上述の特定のN-フェニル置換マレイミドユニットから構成される共重合体からなり予めフィルム化したものを限定された条件下にて一軸延伸配向することにより共重合体分子鎖が特定の分子配向制御させられることで、位相差フィルムとして所期の目的である限定された3次元屈折率特性(即ち、 $n_z \geq n_y > n_x$)を達成できることを見出し、本発明を完成するに至ったものである。

【0025】

負の複屈折性を発現させるためには樹脂フィルム中のポリマー分子鎖を延伸配向させることが必要である。具体的には、上述のフィルム状共重合体を一軸延伸加工温度として、ガラス転移温度領域とされる $T_g - 20^{\circ}\text{C}$ から $+20^{\circ}\text{C}$ の範囲内にて延伸配向させる。 $T_g + 20^{\circ}\text{C}$ を越える温度での延伸配向操作は、フィルムの複屈折は殆ど発現せず、 $T_g - 20^{\circ}\text{C}$ より低温の温度領域でも延伸配向させることが困難である。本発明の所期の目的である、負の複屈折性に基づく光学異方性を発現させる成形加工方法としては予めフィルム化したものを一軸延伸配向する方法を用いることができる。フィルムの一軸延伸配向法としては、通常使用されるものであれば特に限定されるものではなく、例えば、自由幅一軸延伸、定幅一軸延伸などがあり、これに対応する操作が可能な装置としてはロール延伸機、テンター型延伸機などが知られており、小型のものでは引張り試験機、一軸延伸機などがあり、要求される光学特性に応じて用いられる。

【0026】

本発明に用いる式（i）で表される α -オレフィン単位及び式（ii）で表されるN-フェニル置換マレイミド単位からなる共重合体は、係る温度条件下にて無配向フィルムの状態から一軸延伸配向させられると、図1に示すようにフィルム面内の三次元屈折率が、延伸方向を面内のx軸として、面内の直交方向をy軸、面外の垂直方向をz軸と置いた場合に、x軸方向屈折率を n_x 、y軸方向屈折率を n_y 、z軸方向屈折率を n_z とすると、図3に示す $n_z \geq n_y > n_x$ となるものを得ることができる。

【0027】

この3次元屈折率の関係は分子構造と対応付けることができ、特に式（ii）に示されるN-フェニル置換マレイミドのオルト位の置換基、即ちR6及び／又はR10が前述のような好適な置換基の場合に、式（i）との共重合体を一軸延伸配向させると $n_z \geq n_y > n_x$ の関係を得ることができるが、R6とR10いずれにも置換基がないような場合には $n_z \geq n_y > n_x$ とはならず、例えば、 $n_x > n_y \geq n_z$ のようなものとなってしまう。

【0028】

即ち分子鎖延伸方向と異なる方向に大きな分極異方性を形成させるような分子

設計、一軸延伸加工を行うことで特異的な $n_z \geq n_y > n_x$ なる関係を得ることができる。延伸配向するためのフィルムを作成する場合、押出成形又は溶液キャスト法などを用いることができる。

【0029】

以下、押出成形によるフィルム作成方法を述べる。

【0030】

押出成形では上述のようにして得られる共重合体をT型ダイスと称されるような薄いダイス隙間を通して引き取りを行うことで、任意の厚みのフィルムを得ることができる。

【0031】

フィルム成形に用いる前述の共重合体からなる光学材料は、予め80℃から130℃の温度範囲にて加熱乾燥を行うことが望ましく、これにより成形のガス発泡などによる外観不良を抑制することができる。押出成形の際、望む厚みと光学純度に応じて異物の濾過のためのフィルターを設置することが望ましい。押出成形条件としては加熱、剪断応力によって共重合体が溶融流動する、 T_g よりも十分に高温度で速度1,000/s未満として加工を行うことが望ましい。ダイス通過後の溶融状態のフィルムは冷却固化のために低温度金属ロールやスチールベルトなどを利用することができる。

【0032】

フィルムの押出成形制御は、それぞれフィルムの流動方向と幅方向及び厚み方向の分子鎖配向度ができるだけ一様であるような条件を設定することが重要である。

【0033】

即ち、フィルムの任意部分の3次元屈折率が大きく異なると、これに続く一軸延伸配向制御によって発現させられる3次元屈折率もフィルムの評価位置によってさらに大きく異なるためである。

【0034】

フィルムの押出成形において、得られるフィルム任意部分の3次元屈折率を出来るだけ一様にするための方法としては広く知られる成形加工技術を用いること

ができる。即ち、ダイスからの樹脂の吐出を位置によって均一にする操作や、吐出後のフィルム冷却工程を均一にする操作及びこれに関する装置などが用いられる。

【0035】

溶液キャスト法を用いて延伸配向用のフィルムを作成する場合には、共重合体が可溶性を示す溶剤を選択し、その中から必要に応じて1種類又は複数用いることができる。

【0036】

以下、溶液キャスト法によるフィルム作成方法を述べる。

【0037】

溶液キャストの溶剤としては上述の共重合体からなる光学材料が可溶性を示す、塩化メチレン、クロロホルム、クロルベンゼン、トルエン、キシレン、メチルエチルケトンなどを用いることができるが、これに限定されるものではない。特に溶剤揮発速度制御の目的から良溶剤（例えば、塩化メチレン、クロロホルムなど）と貧溶剤（例えば、メタノール、エタノール等のアルコール類）を組み合わせることもできる。

【0038】

溶液キャスト法におけるフィルムからの溶剤の除去は加熱条件の設定により、フィルムに気泡や内部空隙を形成しないようを行うことが重要であり、後に続く延伸配向操作時点にて残留溶剤濃度が数千 ppm ~ 2 wt % 以下にあることが望ましい。

【0039】

フィルムの延伸配向操作によって、均一な光学異方性を発現させるためには、前述の溶液キャスト法などにより作成する際に不均一な配向や残留歪みがなく、光学的に等方性となるようを行うことが望ましい。

【0040】

続く一軸延伸配向操作は、当該材料のガラス転移温度領域において延伸操作を行う必要がある。ガラス転移温度領域としては、当該材料の貯蔵弾性率が低下し始める温度から損失弾性率 > 貯蔵弾性率となり、高分子鎖の配向が緩和により消

失する温度以下の領域を指す。

【0041】

延伸配向操作としては延伸温度、フィルムを延伸させる際の歪み速度、変形率を変えることで行う方法、例えば、松本喜代一、高分子加工One Point 2 「フィルムをつくる」、高分子学会編集、共立出版、1993年を参考にすればよい。延伸配向操作としては、前述の負の複屈折性を発現させる方法に記載したガラス転移温度領域とされる $T_g - 20^{\circ}\text{C}$ から $+20^{\circ}\text{C}$ の範囲内にて行うことが重要である。

【0042】

本発明の共重合体からなる透明耐熱樹脂光学材料は必要に応じて熱安定剤や紫外線安定剤などの添加剤や可塑剤を加えてもよい。これら可塑剤や安定剤などの添加剤としては樹脂材料用として公知のものを使用してもよい。ただしこれらの添加剤や可塑剤は本発明の所期の目的を損なわない範囲で配合する必要がある。

【0043】

本発明の位相差フィルムは単独の使用以外に、同種の光学フィルム及び又は異種光学フィルムと積層して用いることで光学特性を制御することができる。積層して用いる異種光学フィルムとして、構成成分がポリビニルアルコール／色素／アセチルセルロースからなる偏光板や、ポリカーボネート製延伸配向フィルムなどを挙げられるがこれに限定されるものではない。

【0044】

負の複屈折性材料を用い一軸延伸配向させた位相差フィルムは、STN型LCD、TFT-TN型LCD、OCB型LCD、VA型LCD、IPS型LCDなどのLCD用の位相差フィルム、1/2波長板、1/4波長板、逆波長分散特性フィルム、光学補償フィルム、カラーフィルター、偏光板との積層フィルムなどに用いることができる。

【0045】

本発明の応用としての用途はこれに限定されるものではなく、負の複屈折性特性として、面内延伸方向をx軸として、面内の直交方向をy軸、面外の垂直方向をz軸と置いた場合に、x軸方向屈折率をn_x、y軸方向屈折率をn_y、z軸方

向屈折率を n_z とすると、 $n_z \geq n_y > n_x$ なる複屈折性を利用する場合には広く利用できる。

【0046】

本発明の位相差フィルムの平均屈折率は 1.50 以上であり、アッペ数が 30 以上であり、ガラス転移温度 (T_g) が 100°C 以上、好ましくは 120°C 以上、特に好ましくは 140°C 以上を示すものとなる。本発明の位相差フィルムは、フィルム厚み $\leq 200 \mu\text{m}$ 程度のものである。

【0047】

【実施例】

以下、本発明を実施例にて具体的に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。各物性値の測定方法を下記に示す。

<透明性；光線透過率及びヘーズ>

①光線透過率測定は J I S K 7105 (1981年版) に準拠して測定した。
。

【0048】

②ヘーズ測定は J I S K 7105 (1981年版) に準拠して測定した。

<複屈折の正負判定、位相差量の測定>

栗屋裕, 高分子素材の偏光顕微鏡入門, アグネ技術センター, 第5章, p p 7
8-82, 2001年に記載の方法により測定した。

【0049】

①偏光顕微鏡 ($\lambda / 4$ 板加色判定法)

複屈折の正負判定は $\lambda / 4$ 板による加色判定法として知られる方法を用いた。
。

【0050】

②偏光顕微鏡 (Senarmont 干渉法)

セナルモン・コンペンセーターを用いた位相差量の測定法を用いた。

<屈折率、アッペ数>

J I S K 7142 (1981年版) に準拠して測定した。

<熱的性質；ガラス転移温度の測定>

セイコー電子（株）製DSCを用いて測定した。

＜三次元屈折率＞

王子計測機器（株）製試料傾斜型自動複屈折計（KOBRA-21）を用いて測定した。

【0051】

実施例1

1リッターオートクレーブ中、トルエン400ml溶剤に対して重合開始剤としてパープチルネオデカノエート1mモル存在下にてN-(2,6-ジエチルフェニル)マレイミドを0.42モルとイソブテンを4.05モルとを60℃、5時間重合反応させて、N-(2,6-ジエチルフェニル)マレイミドとイソブテンからなる共重合体（PS換算の数分子量Mn=170,000、分子量分布Mw/Mn=2.6）を得た。このN-(2,6-ジエチルフェニル)マレイミドとイソブテンからなる共重合体20重量%と塩化メチレン80重量%の溶液を調整したものをPETフィルム上に流延し、溶液が固化、剥離させる。剥離後のフィルムを更に100℃にて4時間、120℃から160℃の温度にてそれぞれ1時間乾燥し、真空乾燥機にて180℃で4時間乾燥して約100μmのフィルムを得た。

【0052】

このフィルムの光線透過率は92%、ヘイズは0.3%、屈折率は1.55、アッペ数は40、位相差量は0nmであった。このフィルムのガラス転移温度（Tg）は209℃であった。

【0053】

このフィルムから5cm×5cmの小片を切り出し、柴山科学機械製延伸装置を用いて、温度220℃、延伸速度15mm/min.の条件にて自由幅一軸延伸により+50%延伸した。延伸したフィルムの複屈折は負であり、フィルム厚み100μm当たりの面内位相差量Re=(nx-ny)/dは-120nmであった。但しここでdはフィルム厚みである。三次元屈折率は、nx=1.53913、ny=1.54042、nz=1.54045であった。

【0054】

実施例 2

実施例 1 で用いた N-(2, 6-ジエチルフェニル) マレイミドとイソブテンからなる共重合体 (PS 换算の数分子量 $M_n = 170,000$ 、分子量分布 $M_w/M_n = 2.6$) を株式会社東洋精機製作所製のラボプラスミル二軸押出機 φ 20 mm により、加工温度は 285°C にて、T ダイ押出によるフィルム成形を実施し、100 μm のフィルムを得た。

【0055】

得られたフィルムの光線透過率は 92%、ヘイズは 0.5%、屈折率は 1.55、アッペ数は 40 であった。このフィルムを 240°C オーブン中で 1 時間加熱したものの位相差量は 2 nm であった。このフィルムのガラス転移温度 (T_g) は 209°C であった。

【0056】

このフィルムを用いて、実施例 1 と同様の条件にて自由幅一軸延伸を行った。

【0057】

延伸したフィルムの複屈折は負であり、フィルム厚み 100 μm当たりの面内位相差量 $R_e = (n_x - n_y) d$ は -120 nm であった。但し、ここで d はフィルム厚みである。三次元屈折率は、 $n_x = 1.53913$ 、 $n_y = 1.54042$ 、 $n_z = 1.54045$ であった。

【0058】

実施例 3

実施例 1 で得られた約 100 μm の溶媒キャストフィルムから 5 cm × 5 cm の小片を切り出し、柴山科学機械製延伸装置を用いて、温度 230°C、延伸速度 15 mm/m in. の条件にて自由幅一軸延伸により +50% 延伸した。

【0059】

延伸したフィルムの複屈折は負であり、フィルム厚み 100 μm当たりの位相差量は -68 nm であった。三次元屈折率は、 $n_x = 1.53946$ 、 $n_y = 1.54023$ 、 $n_z = 1.54031$ であった。

【0060】

比較例 1

1リッターオートクレーブ中、トルエン400m l溶剤に対して重合開始剤としてパープチルネオデカノエート1mモル存在下にてN-フェニルマレイミドを0.42モルとイソブテンを4.05モルとを60℃、5時間重合反応させて、N-フェニルマレイミドとイソブテンからなる共重合体（PS換算の数分子量M_n=162,000、分子量分布M_w/M_n=2.6）を得た。

【0061】

このN-フェニルマレイミドとイソブテンからなる共重合体20重量%と塩化メチレン80重量%の溶液を調整したものをPETフィルム上に流延し、溶液が固化、剥離させる。剥離後のフィルムを更に100℃にて4時間、120℃から160℃の温度にてそれぞれ1時間乾燥し、真空乾燥機にて180℃で4時間乾燥して約100μmのフィルムを得た。

【0062】

このフィルムの光線透過率は92%、ヘイズは0.3%、屈折率は1.55、アッペ数は32、位相差量は0nmであった。このフィルムのガラス転移温度（Tg）は192℃であった。

【0063】

このフィルムを実施例1と同様に、延伸加工温度200℃にて一軸延伸を行った。

【0064】

延伸したフィルムの複屈折は正であり、フィルム厚み100μm当たりの面内位相差量R_e=(n_x-n_y)dは+65nmであった。三次元屈折率はn_x=n_y>n_zであった。

【0065】

【発明の効果】

本発明は、耐熱性、力学特性などに優れる負の複屈折性材料からなる位相差フィルムであり、LCD表示素子用のフィルムとして用いることができる。

【図面の簡単な説明】

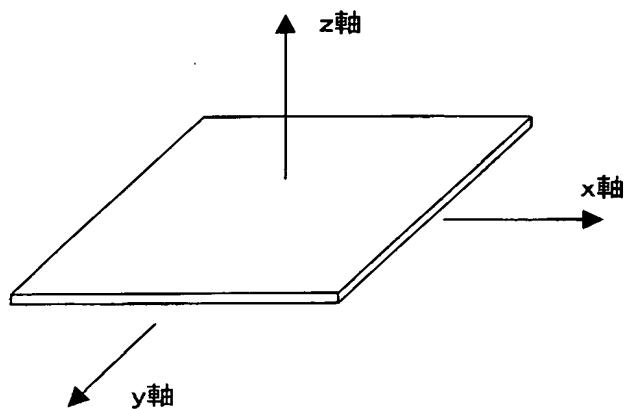
【図1】フィルムの三次元屈折率の軸方向を示す図である。

【図2】正の複屈折性材料の一軸延伸による三次元屈折率を示す図である。

【図3】負の複屈折性材料の一軸延伸による三次元屈折率を示す図である。

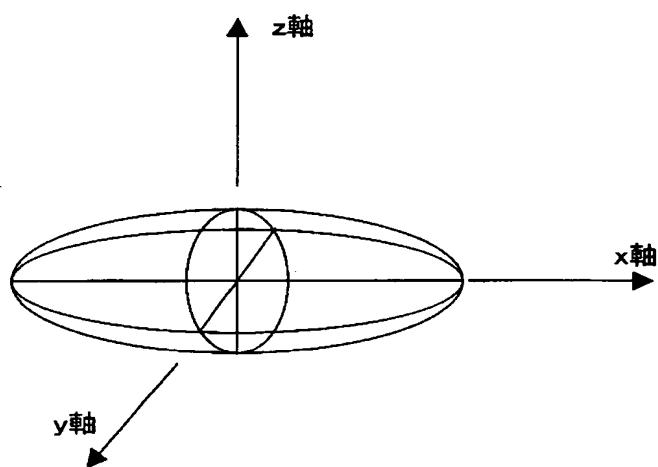
【書類名】図面

【図 1】

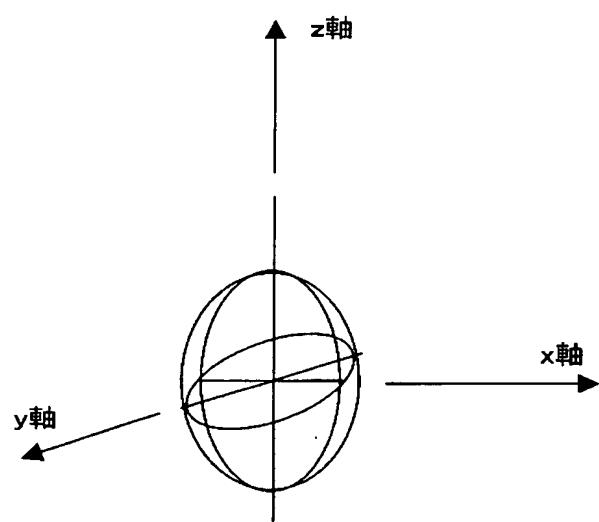


【図 2】

(明細書)



【図3】



【書類名】要約書

【要約】

【課題】 本発明の目的は、耐熱性に優れ、透明性を示す樹脂フィルムを一軸延伸配向させてなる負の複屈折を示す位相差フィルムを提供することにある。

【解決手段】 透明耐熱樹脂が、 α -オレフィン単位及びN-フェニル置換マレイミド単位からなる共重合体であって、ポリスチレン換算の重量平均分子量が 5×10^3 以上 5×10^6 以下である透明光学材料をフィルム成形して、更にガラス転移温度（以下Tgと称する）を基準としTg±20℃の範囲で一軸延伸加工し負の複屈折性を示すフィルムであり、一軸延伸配向後の三次元屈折率が、延伸方向を面内x軸として、面内の直交方向をy軸、面外の垂直方向をz軸と置いた場合に、x軸方向屈折率をnx、y軸方向屈折率をny、z軸方向屈折率をnzとすると、 $n_z \geq n_y > n_x$ である位相差フィルムを用いる。

【選択図】 選択図なし

認定・付加情報

特許出願の番号	特願2003-008138
受付番号	50300060092
書類名	特許願
担当官	第六担当上席 0095
作成日	平成15年 1月17日

<認定情報・付加情報>

【提出日】	平成15年 1月16日
-------	-------------

次頁無

特願 2003-008138

出願人履歴情報

識別番号 [000003300]

1. 変更年月日 [変更理由]	1990年12月 2日 住所変更
住 所	山口県新南陽市開成町4560番地
氏 名	東ソ一株式会社
2. 変更年月日 [変更理由]	2003年 4月 21日 住所変更
住 所	山口県周南市開成町4560番地
氏 名	東ソ一株式会社